

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-072464
(43)Date of publication of application : 21.03.2001

(51)Int.Cl. C04B 35/46
H01B 3/12
H01P 7/10

(21)Application number : 11-236072 (71)Applicant : KYOCERA CORP
(22)Date of filing : 23.08.1999 (72)Inventor : MURAKAWA SHUNICHI

(30)Priority
Priority number : 11184426 Priority date : 29.06.1999 Priority country : JP

(54) DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND DIELECTRIC RESONATOR USING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a dielectric ceramic composition having both high dielectric constant and high Q-value in high-frequency region, with its temperature coefficient τ_f of resonance frequency controllable stably to low levels.

SOLUTION: This dielectric ceramic composition contains at least La, Al, Sr and Ti as metallic elements, having the compositional formula $a\text{La}_2\text{O}_3.b\text{Al}_2\text{O}_3.c\text{SrO}.d\text{TiO}_2$; wherein the parameters a, b, c and d are adjusted so as to meet the following ranges, respectively (where $a+b+c+d=1$): $0.0954=a=0.1596$, $0.0954=b=0.1596$, $0.3903=c=0.5516$ and $0.2129=d=0.3546$, and also $0.8181=b/a=1.2222$ and $0.4285=d/c<0.7500$.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C) 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-72464

(P 2001-72464 A)

(43) 公開日 平成13年3月21日 (2001. 3. 21)

(51) Int. C 1. ⁷	識別記号	F I	テーマコード ⁸ (参考)
C 0 4 B 35/46		C 0 4 B 35/46	C 4G031
H 0 1 B 3/12	3 0 4	H 0 1 B 3/12	5G303
	3 1 9		5J006
	3 2 6		3 2 6
	3 3 7		3 3 7

審査請求 未請求 請求項の数 4

O L

(全 7 頁)

最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-236072

(22) 出願日 平成11年8月23日 (1999. 8. 23)

(31) 優先権主張番号 特願平11-184426

(32) 優先日 平成11年6月29日 (1999. 6. 29)

(33) 優先権主張国 日本 (JP)

(71) 出願人 000006633

京セラ株式会社

京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

(72) 発明者 村川 俊一

鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式

会社鹿児島国分工場内

F ターム(参考) 4G031 AA05 AA09 AA11 AA17 AA18

AA19 AA29 BA09

5G303 AA01 AA02 AA05 AA10 AB06

AB08 AB11 BA12 CA01 CB01

CB15 CB18 CB32 CB35 CB37

CB43

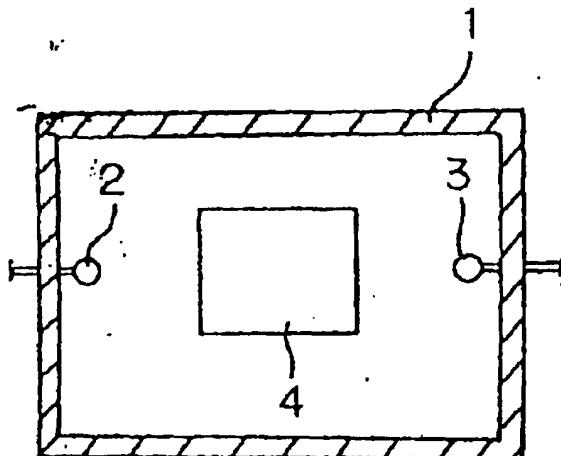
5J006 HC07

(54) 【発明の名称】誘電体磁器組成物及びこれを用いた誘電体共振器

(57) 【要約】

【課題】高周波領域において高い誘電率及び高いQ値を有するとともに、共振周波数の温度係数 τ_f を安定に小さく制御できる誘電体磁器組成物を得る。

【解決手段】金属元素として少なくともLa, Al, Sr, Tiを含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を $a \text{La}_2 \text{O}_3 \cdot b \text{Al}_2 \text{O}_3 \cdot c \text{SrO} \cdot d \text{TiO}_2$ と表した時、前記a、b、c、d、が、 $0.095 \leq a \leq 0.1596$ 、 $0.0954 \leq b \leq 0.1596$ 、 $0.3903 \leq c \leq 0.5516$ 、 $0.2129 \leq d \leq 0.3546$ 、 $0.8181 \leq d/a \leq 1.2222$ かつ $0.4285 \leq d/c < 0.7500$ (ただし $a + b + c + d = 1$) と表される組成範囲内に調整する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】金属元素として少なくともLa、Al、Sr及びTiを含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を

$a \text{La}_2\text{O}_3 + b \text{Al}_2\text{O}_3 + c \text{SrO} + d \text{TiO}_2$

と表したとき、前記a、b、c、及びdが

0.0954 ≤ a ≤ 0.1596

0.0954 ≤ b ≤ 0.1596

0.3903 ≤ c ≤ 0.5516

0.2129 ≤ d ≤ 0.3546

0.8181 ≤ b/a ≤ 1.2222

0.4285 ≤ d/c < 0.7500

(ただし a+b+c+d=1)

の範囲内にあることを特徴とする誘電体磁器組成物。

【請求項2】金属元素として少なくともLa、Al、Sr及びTiを含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を

$a \text{La}_2\text{O}_3 + b \text{Al}_2\text{O}_3 + c \text{SrO} + d \text{TiO}_2$

と表したとき、前記a、b、c、及びdが

0.0954 ≤ a ≤ 0.1596

0.0954 ≤ b ≤ 0.1596

0.3903 ≤ c ≤ 0.5516

0.2129 ≤ d ≤ 0.3546

0.8181 ≤ b/a ≤ 1.2222

0.4285 ≤ d/c ≤ 0.7500

(ただし a+b+c+d=1)

を満足する主成分と、該主成分100重量部に対して、MnをMnO₂換算で3.0重量部以下、又はWをWO₃換算で5.0重量部以下、又はMoをMoO₃換算で5.0重量部以下含有することを特徴とする誘電体磁器組成物。

【請求項3】金属元素として少なくともLa、Al、Sr及びTiを含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を

$a \text{La}_2\text{O}_3 + b \text{Al}_2\text{O}_3 + c \text{SrO} + d \text{TiO}_2$

と表したとき、前記a、b、c及びd、が

0.0954 ≤ a ≤ 0.1596

0.0954 ≤ b ≤ 0.1596

0.3903 ≤ c ≤ 0.5516

0.2129 ≤ d ≤ 0.3546

0.8181 ≤ b/a ≤ 1.2222

0.4285 ≤ d/c ≤ 0.7500

(ただし a+b+c+d=1)

を満足する主成分と、該主成分100重量部に対して、Mn、W及びMoをMnO₂、WO₃、MoO₃換算で合計6.0重量部以下含有することを特徴とする誘電体磁器組成物。

【請求項4】請求項1乃至4のいずれかに記載した誘電体磁器組成物からなる共振媒体を一対の入出力端子間に配置し、これら入出力端子間に高周波信号を印可して所

望の周波数で共振させるようにしたことを特徴とする誘電体共振器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、マイクロ波、ミリ波等の高周波領域において、高いQ値を有する誘電体磁器組成物に関するものであり、例えば、マイクロ波やミリ波などの高周波領域において使用される種々の共振器用材料やMIC (Monolithic IC) 用誘電体

10 基板材料、誘電体導波路用材料や積層型セラミックコンデンサー等に用いることができる誘電体磁器組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】誘電体磁器は、マイクロ波やミリ波等の高周波領域において、誘電体共振器、MIC用誘電体基板や導波路等に広く利用されている。そこに要求される特性として(1) 誘電体中では波長が $1/\epsilon r^{1/2}$ に短縮されるので、小型化の要求に対して比誘電率が大きい事、(2) 高周波での誘電損失が小さい事、すなわち高Q20 値であること、(3) 共振周波数の温度に対する変化が小さいこと、即ち、比誘電率の温度依存性が小さく且つ安定であること、以上の3つの特性が主として挙げられる。

20 【0003】従来、この種の誘電体磁器としては、例えば、Ba (Mg_{1/3} Ta_{2/3}) O₃系材料(特公昭59-23048号)、Ba (Zn_{1/3} Ta_{2/3}) O₃系材料(特公昭59-48484号)、Ba (Zn_{1/3} Nb_{2/3}) O₃系材料(特公昭53-35453号)、Ba (Mg_{1/3} Nb_{2/3}) O₃系材料(特開昭53-35345)などの酸化物磁器材料が知られている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、最近では使用する周波数領域がさらに高く成ってきており、これに対応してさらに高いQ値を持つ材料が要求されている。これから見て、従来の誘電体磁器組成物は、無負荷Qが小さかったり、比誘電率が小さい為、共振器にしたときの形状が大きくなり、また、温度係数が大きかったりして、マイクロ波周波数帯で使用するには、いずれかに難点があり、実際の使用においては不都合が多い。また、これらの材料は、焼成温度が高く、焼成コストがかかり、さらに、材料自体も、Ta、Nbを含む為高価であることから、コストが高く、市場に出回り難いと言った問題があった。

40 【0005】本発明は、上記の欠点に鑑み案出されたもので、比誘電率が大きく、高Q値で、比誘電率の温度依存性が小さく且つ安定であり、さらに安価な材料での誘電体磁器組成物を提供するものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明者は上記問題に対し、検討を重ねた結果、金属元素として少なくともL

a, Al, Sr, Ti を含有し、これらを特定の範囲に調整することによって、比誘電率が大きく、高Q値で、比誘電率の温度依存性が小さく且つ、安定である誘電体磁器組成物が得られることを知見した。

【0007】即ち、本発明の誘電体磁器組成物は、金属元素として少なくとも La, Al, Sr, Ti を含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を $aLa_2O_3 \cdot bAl_2O_3 \cdot cSrO \cdot dTiO_2$ と表した時、前記a、b、c、d、が、

$$0.0954 \leq a \leq 0.1596$$

$$0.0954 \leq b \leq 0.1596$$

$$0.3903 \leq c \leq 0.5516$$

$$0.2129 \leq d \leq 0.3546$$

$$0.8181 \leq b/a \leq 1.2222$$

$$0.4285 \leq d/c < 0.7500$$

(ただし $a+b+c+d=1$)

と表される組成範囲内にあることを特徴とする。

【0008】また、金属元素として少なくとも La, Al, Sr 及び Ti を含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を

$$aLa_2O_3 \cdot bAl_2O_3 \cdot cSrO \cdot dTiO_2$$

と表したとき、前記a、b、c及びdが

$$0.0954 \leq a \leq 0.1596$$

$$0.0954 \leq b \leq 0.1596$$

$$0.3903 \leq c \leq 0.5516$$

$$0.2129 \leq d \leq 0.3546$$

$$0.8181 \leq b/a \leq 1.2222$$

$$0.4285 \leq d/c < 0.7500$$

(ただし、 $a+b+c+d=1$)

を満足する主成分と、該主成分100重量部に対して、 Mn を MnO_2 換算で3.0重量部以下、又は W を WO_3 換算で5.0重量部以下、又は Mo を MoO_3 換算で5.0重量部以下含有することを特徴とする。

【0009】また、金属元素として少なくとも La, Al, Sr, Ti を含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を

$$aLa_2O_3 \cdot bAl_2O_3 \cdot cSrO \cdot dTiO_2$$

と表したとき、前記a、b、c、d、が

$$0.0954 \leq a \leq 0.1596$$

$$0.0954 \leq b \leq 0.1596$$

$$0.3903 \leq c \leq 0.5516$$

$$0.2129 \leq d \leq 0.3546$$

$$0.8181 \leq b/a \leq 1.2222$$

$$0.4285 \leq d/c < 0.7500$$

(ただし、 $a+b+c+d=1$)

を満足する主成分と、該主成分100重量部に対して、 Mn, W, Mo を MnO_2, WO_3, MnO_3 換算で6.0重量部以下含有することを特徴とする。

【0010】また、本発明の誘電体共振器は、一対の入出力端子間に誘電体磁器を配置してなり、電磁界結合に

より作動する誘電体共振器において、前記誘電体磁器が、上記高周波用誘電体磁器組成物からなるものである。

【0011】本発明は、上記構成により、比誘電率 ϵ_r が大きく、高Q値であり、共振周波数の温度係数 τ_f の絶対値が小さく、且つ、 ϵ_r, Q, τ_f の値を安定に制御でき、さらに、 Ta, Nb 等の高価な元素を含む材料を使う事無く、安価な誘電体磁器組成物及び誘電体共振器となる。

10 【0012】

【発明の実施の形態】本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、金属元素として少なくとも La, Al, Sr 及び Ti を含有する複合酸化物を主成分組成物とする物である。かかる主成分組成物における前記金属元素のモル比による組成式を

$$aLa_2O_3 \cdot bAl_2O_3 \cdot cSrO \cdot dTiO_2$$

と表したとき、前記a、b、c、dが

$$0.0954 \leq a \leq 0.1596$$

$$0.0954 \leq b \leq 0.1596$$

$$20 0.3903 \leq c \leq 0.5516$$

$$0.2129 \leq d \leq 0.3546$$

$$0.8181 \leq b/a \leq 1.2222$$

$$0.4285 \leq d/c < 0.7500$$

(ただし、 $a+b+c+d=1$)

であることが重要である。これらのa、b、c、dを上記の範囲に限定した理由は以下の通りである。

【0013】即ち、 $0.0954 \leq a \leq 0.1596$ としたのは、 $a < 0.0954$ の場合は、共振周波数の温度係数 τ_f が正に大きくなり、共振周波数の温度係数 τ_f の絶対値が30を大きく越えてしまうからであり、 $a > 0.1596$ の場合は、 τ_f が負に大きくなり、その絶対値が30を越えてしまうからである。特に $0.1211 \leq a \leq 0.1369$ の範囲が好ましい。

【0014】また、 $0.0954 \leq b \leq 0.1596$ としたのは、 $b < 0.0954$ の場合は、共振周波数の温度係数 τ_f が正に大きくなり、 τ_f の絶対値が30を大きく越え、 $b > 0.1596$ の場合は、共振周波数 τ_f が負に大きくなり、 τ_f の絶対値が30を越えてしまうからである。 b は、特に $0.1211 \leq b \leq 0.1369$ の範囲が好ましい。

【0015】さらに、 $0.3903 \leq c \leq 0.5516$ としたのは、 $c < 0.3903$ の場合は、共振周波数の温度係数 τ_f が負に大きくなり、 τ_f の絶対値が30を大きく越えてしまうからである。 $c > 0.5516$ の場合には、共振周波数の温度係数 τ_f が正に大きくなり、その絶対値が30を越えてしまうからである。特に、 $0.4284 \leq c \leq 0.4698$ の範囲が好ましい。

【0016】また、 $0.2129 \leq d \leq 0.3546$ としたのは、 $d < 0.2129$ の場合は、共振周波数の温度係数 τ_f が負に大きくなり、その絶対値が30を越え

50

えてしまうからであり、 $d > 0.3546$ の場合は、共振周波数の温度係数 τ_f が正に大きくなり、その絶対値が 30 を越えてしまうからである。特に、 $0.2759 \leq d \leq 0.3107$ が好ましい。

【0017】さらに、 $0.8181 \leq b/a \leq 1.22$ としたのは、 $b/a < 0.8181$ の場合や、 $b/a > 1.22$ の場合には、 Q_f が大きく低下し、40000 より低下するからである。特に、 $0.9602 \leq b/a \leq 1.1744$ が好ましい。

【0018】また、 $0.4285 \leq d/c < 0.750$ としたのは、 $d/c < 0.4285$ の場合は、比誘電率 ϵ_r が小さくなり、 $d/c \geq 0.7500$ の場合には、 τ_f が正に大きくなり、その絶対値が 30 を越えてしまうからである。特に $0.6129 \leq d/c \leq 0.6949$ が好ましい。

【0019】さらに、 $0.8181 \leq b/a \leq 1.22$ であり、かつ $0.4285 \leq d/c < 0.7500$ としたのは、この範囲において、 τ_f を 0 付近で調整できるからである。

【0020】また、本発明は、上記主成分 100 重量部に対して、 MnO_2 換算で 3.0 重量部以下 Mn を含有させることによって、 ϵ_r や τ_f を変化させずに、 Q 値のみを向上させることができるのである。 Mn の含有量を MnO_2 換算で 3.0 重量部以下としたのは、3.0 重量部を越えると Q 値が極端に小さくなるためである。さらに、上述した効果を奏する為には、 Mn の量を MnO_2 換算で $0.01 \sim 3.0$ 重量部とすることが望ましく、特に $0.1 \sim 1.0$ 重量部とすることが望ましい。

【0021】また、本発明は、上記主成分 100 重量部に対して、 WO_3 換算で 5.0 重量部以下 W を含有させることによって、 Q 値を向上させることができるのである。 W の含有量を WO_3 換算で 5.0 重量部としたのは、5.0 重量部を越えると Q 値が極端に小さくなるためである。さらに、上述した効果を奏する為には、 W の量を WO_3 換算で $0.01 \sim 5.0$ 重量部とすることが望ましく、特に $0.1 \sim 2.0$ 重量部とすることが望ましい。

【0022】また、本発明は、上記主成分 100 重量部に対して、 MoO_3 換算で 5.0 重量部以下 Mo を含有させることによって、 Q 値を向上させることができるのである。 Mo の含有量を MoO_3 換算で 5.0 重量部以下としたのは、5.0 重量部を越えると Q 値が極端に小さくなるためである。さらに、上述した効果を奏する為には、 Mo を MoO_3 換算で $0.01 \sim 5.0$ 重量部とすることが望ましく、特に $0.1 \sim 2.0$ 重量部とすることが望ましい。

【0023】なお、上記 Mn 、 W 、 Mo の各成分は、それぞれ 1 種又は 2 種以上を含有させることができる。これらの成分を全て含有する場合は、上記主成分 100 重量部に対して、 MnO_2 、 WO_3 、 MoO_3 換算で合計

6.0 重量部以下含有させることによって、 Q 値を向上させることができる。 Mn 、 W 、 Mo の含有量を MnO_2 、 WO_3 、 MoO_3 換算で 6.0 重量部以下としたのは、6.0 重量部を越えると Q 値が極端に小さくなるためである。さらに、上述した効果を奏する為には、 MnO_2 、 WO_3 、 MoO_3 換算で $0.01 \sim 6.0$ 重量部とすることが望ましく、特に $0.1 \sim 2.0$ 重量部とすることが望ましい。

【0024】本発明の誘電体磁器組成物は、例えば、以下のようにして作製される。出発原料として、高純度の酸化ランタン、酸化アルミニウム、炭酸ストロンチウム、酸化チタンの各粉末を用いて、所望の割合となるよう秤量後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $2.0 \mu m$ 以下となるまで 10 ~ 30 時間、ジルコニアボール等を使用したミルにより湿式混合・粉碎を行う。この混合物を乾燥後、 $1000 \sim 1300^\circ C$ で 2 ~ 10 時間仮焼し、さらに 5 重量% のバインダーを加えてから造粒し、得られた粉末を所望の成形手段、例えば、金型プレス、冷間静水圧プレス、押し出し成形等により任意の形状に成形後、 $1500 \sim 1700^\circ C$ の温度で 1 ~ 10 時間大気中において焼成することにより得られる。

【0025】本発明における誘電体磁器組成物では、 La 、 Al 、 Si 、 Ti の出発原料としては、酸化物以外に炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩、水酸化物等のように、酸化性雰囲気での熱処理によって酸化物を生成し得る化合物を用いても良い。

【0026】本発明においては、磁器中に不可避不純物として、 Ca 、 Zr 、 Si 、 Ba 等が混入する場合があるが、これらは、各々または全部で、酸化物換算で 0.1 重量% 程度混入しても特性上問題ない。

【0027】本発明の上記誘電体磁器組成物は、誘電体共振器用としても最も有用である。本発明の誘電体共振器として、図 1 の TE モード型誘電体共振器の概略図を示した。図 1 の共振器は、金属ケース 1 の両側に入力端子 2 及び出力端子 3 を形成し、これらの端子 2、3 の間に上記したような組成からなる誘電体磁器 4 を配置して構成される。このように、TE モード型の誘電体共振器は、入力端子 2 からマイクロ波が入力され、マイクロ波は誘電体磁器 4 と自由空間との境界の反射によって誘電体磁器 4 内に閉じこめられ、特定の周波数で共振を起こす。

【0028】この信号が出力端子 3 と電磁界結合し、出力される。また、図示しないが、本発明の誘電体磁器組成物 TEM モードを用いた同軸形共振器やストリップ線路共振器、TM モードの誘電体磁器共振器、その他の共振器に適用しても良いことは勿論である。

【0029】

【実施例】実施例 1

出発原料として高純度の酸化ランタン (La_2O_3)、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、炭酸ストロンチウム

($SrCO_3$)、酸化チタン (TiO_2) の各粉末を用いて、それらを表1となるように秤量後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $2.0 \mu m$ 以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉碎を行った。なお、ミルのボールの種類や他の種々の条件により、 ZrO_2 や SiO_2 、その他の希土類元素の不純物が合計で1重量%以下含有される場合がある。

【0030】この混合物を乾燥後、 $1200^\circ C$ で2時間仮焼し、さらに約5重量%のバインダーを加えてから造粒し、得られた粉末を約 $1\text{ton}/cm^2$ の圧力で円板状に成形し、 $1500\sim1700^\circ C$ の温度で2時間大気中において焼成した。

* 【0031】得られた磁器の円板部を平面研磨し、アセトン中で超音波洗浄し、 $150^\circ C$ で1時間乾燥した後、円柱共振器法により測定周波数 $3.5\sim4.5\text{GHz}$ で比誘電率 ϵ_r 、Q値、共振周波数の温度係数 τ_f を測定した。Q値は、マイクロ波誘電体において一般に成立する $Q\text{値} \times \text{測定周波数 } f = \text{一定}$ の関係から 1GHz でのQ値に換算した。

【0032】共振周波数の温度係数 τ_f は、 $-40\sim85^\circ C$ の範囲で測定した。

10 【0033】

【表1】

*

No.	MATERIAL			T ₁ O ₂	b/a	d/a	TEST		
	L ₂ O ₃	A ₁₂ O ₃	SiO ₂				ε _r	Q	f(GHz)
1	0.1452	0.1452	0.4258	0.2838	1.0000	0.5855	30.3	80000	-10
2	0.1452	0.1452	0.4056	0.3040	1.0000	0.7495	34.8	70000	-6
3	0.1250	0.1250	0.4875	0.2628	1.0000	0.5395	28.5	80000	-1
4	0.1168	0.0964	0.4728	0.3152	0.8182	0.8667	32.2	81000	11
5	0.1250	0.1250	0.4575	0.2923	1.0000	0.5393	30.2	80000	4
6	0.1255	0.1255	0.4500	0.3002	1.0408	0.6667	30.3	80000	1
7	0.1368	0.1368	0.4284	0.3578	1.0000	0.5851	31.0	87000	-5
8	0.0878	0.1145	0.4570	0.3310	1.1744	0.7243	33.0	72000	8
9	0.1451	0.1452	0.4500	0.2697	0.8602	0.6130	28.3	80000	-11
10	0.1451	0.1451	0.4229	0.2768	1.0000	0.6395	29.0	81000	-15
11	0.1259	0.1259	0.4553	0.1992	1.0000	0.5657	20.5	87000	1
12	0.1211	0.1211	0.4698	0.2690	1.0000	0.5120	22.5	84000	6
13	0.1228	0.1228	0.4650	0.2556	1.0408	0.5128	26.9	81000	8
14	0.1082	0.1082	0.4728	0.3152	1.0000	0.5867	32.2	80000	11
15	0.1422	0.1481	0.4378	0.2798	1.0815	0.5354	28.1	75000	-14
16	0.1211	0.1211	0.4711	0.3107	1.0000	0.5646	31.8	88000	3
17	0.1452	0.1452	0.4867	0.2128	1.0000	0.5266	24.5	100000	-20
18	0.0964	0.1168	0.4728	0.3152	1.2222	0.6617	32.2	80000	11
19	0.1228	0.1228	0.3290	0.2250	1.0408	0.4285	24.5	87000	-4
20	0.1060	0.1060	0.4807	0.3073	1.0000	0.5393	31.8	78000	-16
21	0.1598	0.1308	0.4259	0.2838	0.8182	0.5585	20.1	75000	-10
22	0.1250	0.1250	0.4650	0.2650	1.0000	0.4129	28.6	82000	1
23	0.0968	0.1124	0.5516	0.2364	1.1285	0.4268	26.2	80000	-3
24	0.1368	0.1368	0.4503	0.2758	1.0000	0.5127	29.1	88000	-5
25	0.1422	0.1481	0.4400	0.2697	1.0415	0.6130	28.5	82000	-11
26	0.1200	0.1200	0.4575	0.2828	1.0533	0.5393	30.5	80000	3
27	0.1250	0.1250	0.4500	0.3000	1.0000	0.5887	30.1	84000	2
28	0.1561	0.1538	0.4187	0.2910	1.1267	0.5850	31.3	72000	-8
29	0.1018	0.1103	0.4806	0.3073	1.0535	0.5394	31.0	71000	10
30	0.1308	0.1588	0.4258	0.2838	1.2221	0.6696	30.8	74000	-10
31	0.1081	0.1081	0.5515	0.2363	1.0000	0.4965	24.0	110000	-10
32	0.1202	0.1202	0.4766	0.1947	1.0000	0.6070	24.5	110000	-10.2
33	0.1202	0.1202	0.3653	0.0923	1.0000	0.2498	18.1	19700	-45.1
34	0.1425	0.1073	0.4576	0.2028	0.7654	0.5323	20.1	15600	4
35	0.1898	0.1898	0.4346	0.1948	1.0000	0.4284	22.7	83000	-16
36	0.1075	0.1425	0.4501	0.3020	1.3264	0.6617	20.1	88000	3
37	0.1225	0.1225	0.5822	0.1873	1.0408	0.5323	20.1	105000	-34.9
38	0.1060	0.1072	0.4778	0.3043	1.0210	0.5884	32.8	85000	33.7
39	0.0848	0.1273	0.4727	0.3182	0.9512	0.5888	32.4	87000	33.9
40	0.1273	0.0848	0.4727	0.3182	0.6581	0.5888	29.7	72000	33.5
41	0.2143	0.2143	0.4571	0.1143	1.0000	0.2501	20.8	72000	-37.4

* 印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0034】実施例2

出発原料として高純度の酸化ランタン (L_2O_3)、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、炭酸ストロンチウム ($SrCO_3$)、酸化チタン (TiO_2) の各粉末を用いて、それらを表2となるように秤量後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $2.0 \mu m$ 以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉碎を行った。

【0035】この混合物を乾燥後、 $1200^\circ C$ で2時間仮焼した。この仮焼粉100重量部に対し、 MnO_2 、 WO_3 、 MoO_3 を表2に示す量を添加後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $2.0 \mu m$ 以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉碎を行った。乾燥後、さらに約5重量%のバインダーを加えてから造粒した。

【0036】得られた粉末を約 $1\text{ton}/cm^2$ の圧力で円板状に成形し、 $1500\sim1700^\circ C$ の温度で2時間大気中において焼成した。

【0037】得られた磁器の円板部を平面研磨し、アセトン中で超音波洗浄し、 $150^\circ C$ で1時間乾燥した後、円柱共振器法により測定周波数 $3.5\sim4.5\text{GHz}$ で比誘電率 ϵ_r 、Q値、共振周波数の温度係数 τ_f を測定した。Q値は、マイクロ波誘電体において一般に成立する $Q\text{値} \times \text{測定周波数 } f = \text{一定}$ の関係から 1GHz でのQ値に換算した。

【0038】共振周波数の温度係数 τ_f は、 $-40\sim85^\circ C$ の範囲で測定した。

【0039】

【表2】

試料 No.	組成比(質量比)			比誘電率 ϵ_r	Qf	τ_f ppm/°C	備考
	MnO ₂	WO ₃	MoO ₃				
42	0.005	—	—	30.3	80000	-10	試料No. 1に添加
43	0.010	—	—	30.3	81500	-10	
44	0.100	—	—	30.3	80000	-10	
45	0.200	—	—	30.3	80000	-10	
46	1.000	—	—	30.3	85400	-10	
47	3.000	—	—	30.3	82000	-10	
48	5.500	—	—	30.5	85300	-11	
49	5.000	—	—	30.6	80700	-13	
50	—	0.005	—	30.3	81000	2	試料No. 13に添加
51	—	0.010	—	30.3	82200	2	
52	—	0.100	—	30.3	80000	2	
53	—	0.200	—	30.3	80100	2	
54	—	1.000	—	30.3	85200	2	
55	—	3.000	—	30.3	84900	2	
56	—	5.000	—	30.3	82100	3	
57	—	5.500	—	30.3	80500	3	
58	—	7.000	—	30.5	82000	4	
59	—	—	0.005	30.1	84000	1	試料No. 27に添加
60	—	—	0.010	30.1	84900	2	
61	—	—	0.100	30.1	82200	2	
62	—	—	0.200	30.1	82400	2	
63	—	—	1.000	30.1	81100	2	
64	—	—	3.000	30.1	88800	2	
65	—	—	5.000	30.1	85200	2	
66	—	—	5.500	30.3	80200	2	
67	—	—	7.000	30.3	84900	4	
68	0.010	0.010	0.010	30.5	82500	3	試料No. 26に添加
69	0.100	0.100	0.100	30.5	87100	3	
70	1.000	1.000	1.000	30.5	89700	3	
71	1.000	3.000	2.000	30.5	82500	3	
72	0.100	0.100	1.000	30.5	88300	3	
73	1.000	2.000	1.000	30.5	83500	3	
74	0.100	1.000	4.000	30.5	81500	3	
75	2.000	2.000	2.000	30.5	81800	3	
76	0.100	1.000	6.000	30.5	80200	2	
77	0.100	0.000	1.000	30.5	88900	3	
78	0.000	3.000	3.000	30.5	81000	3	
79	0.005	0.005	6.000	30.5	85700	3	
80	0.000	0.005	6.000	30.5	88800	3	
81	1.000	3.000	3.000	30.5	88500	4	
82	0.000	4.000	3.000	30.5	89200	4	
83	2.000	9.000	4.000	30.5	81000	4	
84	2.000	3.000	2.000	30.5	82000	4	

*印は本発明の範囲外の試料を表す。

【0040】表1、2からも明らかなように、本発明の範囲外の誘電体では、比誘電率又はQ値が低いか、あるいは τ_f の絶対値が30を超えていた。

【0041】これらに対し、本発明により得られた誘電体は、Q値が70000以上、 τ_f が±30 (ppm/°C) 以内の優れた誘電特性が得られることがわかつた。

【0042】

【発明の効果】以上詳述した通り、本発明によれば、金属元素として少なくともLa, Al, Sr, Tiを含有し、これらの金属元素のモル比による組成式を $a\text{La}_2\text{O}_3 \cdot b\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot c\text{SrO} \cdot d\text{TiO}_2$ と表した時、前記a, b, c, dが、

$$0.0954 \leq a \leq 0.1596$$

$$0.0954 \leq b \leq 0.1596$$

$$0.3903 \leq c \leq 0.5516$$

$$0.2129 \leq d \leq 0.3546$$

$$0.8181 \leq b/a \leq 1.2222$$

$$\text{かつ } 0.4285 \leq d/c < 0.7500$$

$$(ただし a+b+c+d=1)$$

と表される組成範囲内に調整することによって、また、この主成分にMn, W, Moを添加することで、高周波領域において比誘電率 ϵ_r が30付近で高いQ値を有するとともに、共振周波数の温度係数 τ_f を0付近に、安

定して制御することができた。

【0043】また、Ta, Nb等を構成元素とする従来の誘電体磁器組成物に比べてより安価な材料を提供することができる。さらに、Ta, Nbで構成されている既存材は、高温で、長時間焼成温度を保持しなければ、結晶の規則化が起こらない為、焼成コストがかかっていたが、本発明の材料であれば、焼成温度の保持時間も2~10時間ですみ、焼成コストが大幅に削減できる。

【0044】これにより、本発明の誘電体磁器組成物は、例えば、自動車電話、コードレス電話、パーソナル無線機、衛星放送受信機等の装置において、マイクロ波やミリ波領域において使用される共振器用材料やMIC用誘電体基板材料、誘電体導波線路、誘電体アンテナ、その他の各種電子部品等に好適に適用することができる。

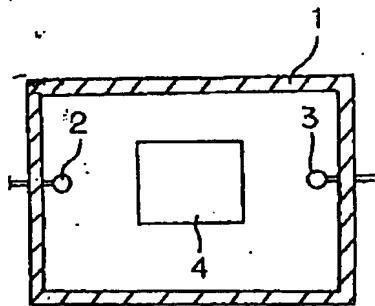
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の誘電体共振器を示す説明図である。

40 【符号の説明】

1. 金属ケース
2. 入力端子
3. 出力端子
4. 誘電体磁器

【図1】



フロントページの続き

(51) Int.Cl. 7

H 01 P 7/10

識別記号

F I
H 01 P 7/10

マークド (参考)